

¹⁹ THE PATENT OFFICE OF JAPAN (JP)
¹² OFFICIAL GAZETTE FOR UNEXAMINED PATENTS (A)

¹¹ Disclosure Number 10-195567

⁴³ Date of Disclosure July 28, 1998

⁵¹ Int. Cl ⁶	Identification Symbols	FI	
C22C 21/00		C22C 21/00	E
B22F 1/00		B22F 1/00	E
C22C 1/05		C22C 1/05	C
1/10		1/10	J
32/00		32/00	Q

Request for Examination Not requested Number of Claims 11 FD
(total 6 pages)

²¹ Application Number	⁷¹ Applicant 000006828 Y.K.K. Corporation
²² Filing Date December 27, 1996	1 Kandaizumicho Chiyoda-ku Tokyo
	⁷² Inventors DATE Hiroki 28-5-1 Tenjinzawa Izumi-ku Sendai-shi Miyagi-ken
	⁷⁴ Agent Attorney YOSHIDA Shigeki

⁵⁴ [Title of Invention]
Self-lubricating aluminum composite material and its
production

⁵⁷ [Summary]
[Subject] To provide self-lubricating aluminum composite material having outstanding characteristics of high strength, wear resistance, and self-lubricating properties as well as its production.
[Means of Resolution] A mixture of aluminum or aluminum alloy powder and boric acid is subjected to mechanical alloying treatment in the presence of auxiliary agents of carbon compounds, followed by pressurization under heating, such as powder compression molding followed by processing such as hot extrusion, casting, compression rolling, or continuous friction welding. If the aluminum or aluminum alloy powder with adhering grinding oil is ground to a size not more than 5 mm, it can be subjected to mechanical alloying treatment as is without the addition of other auxiliary agents. As a result, composite material would be obtained having aluminum oxide particles,

aluminum carbide particles, and boride particles dispersed throughout the matrix, with the mean grain size of the matrix being not more than 5 μm , the mean grain sizes of the dispersed aluminum oxide and the aluminum carbide together being not more than 100 nm, and the mean grain size of boride being not more than 1 μm .

[Scope of Patent Claim]

[Claim 1] Self-lubricating aluminum composite material wherein aluminum oxide particles, aluminum carbide particles and boride particles are dispersed in an aluminum or aluminum alloy matrix, the mean grain size of the matrix being no more than 5 μm , the mean grain sizes of the dispersed aluminum oxide particles and aluminum carbide particles together being not more than 100 nm, and the mean grain size of the boride particles being no more than 1 μm .

[Claim 2] The composite material of Claim 1 wherein the volumetric fraction of the dispersed aluminum oxide particles and the volumetric fraction of the aluminum carbide particles together is under 5%, and the volumetric fraction of the boride particles is under 30%.

[Claim 3] The composite material of Claims 1 or 2 wherein the mean distance among particles of dispersed aluminum oxide, aluminum carbide and boride is 0.02 to 1.5 μm .

[Claim 4] The composite material of any of Claims 1 to 3 wherein the total volumetric fraction of dispersed aluminum oxide particles and aluminum carbide particles is greater than 0.5% and under 8%.

[Claim 5] The composite material of any of Claims 1 to 4 wherein the boride particles comprise at least one of compounds of boron and aluminum, compounds of boron and oxygen, or compounds of boron, aluminum, and oxygen.

[Claim 6] The production of aluminum composite material wherein a mixture of aluminum or aluminum alloy powder and boric acid is subjected to mechanical alloying treatment in the presence of auxiliary agents of carbon compounds, followed by pressurization under heating.

[Claim 7] The production method of Claim 6 wherein aforementioned auxiliary agent is organic solvent or grinding oil.

[Claim 8] The production method of Claims 6 or 7 wherein composite powder obtained through mechanical alloying treatment is subjected to powder compression molding in the atmosphere, in a vacuum or in a non-oxidizing atmosphere, followed by hot extrusion, casting, compression rolling, or continuous friction welding.

[Claim 9] The production method of Claims 6 to 8 wherein aforementioned aluminum or aluminum alloy powder is grinding powder whose size is no more than 5 mm, and aforementioned auxiliary agent is grinding oil adhering to said grinding powder.

[Claim 10] The production method of Claims 6 to 9 wherein aluminum or aluminum alloy material having a uniform grain size distribution and mean grain size of no more than 1 mm is used as aforementioned aluminum or aluminum alloy powder.

[Claim 11] The production method of Claims 6 to 10 wherein aluminum

or aluminum alloy powder under 5 mm in size that had been subjected to mechanical alloying treatment in advance and then suitably sorted so as to have a uniform grain size distribution is used as aforementioned aluminum or aluminum alloy material.

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of Industrial Utilization] The present invention concerns self-lubricating aluminum composite material, specifically, aluminum composite material having outstanding characteristics of high strength, wear resistance, and self-lubricating properties that make it ideal for use in engines, screws, rivets, and other mechanical components of vehicles as well as its production. The present invention also concerns aluminum composite material that is useful as recycling material that can utilize boric acid, which had not been viewed as a raw material for structural composite material, as well as fine aluminum- or aluminum alloy grinding powder, which is unsuited for remelting, as the raw materials through the utilization of mechanical alloying treatment as well as its production.

[0002]

[Related Art] The uniform dispersion of reinforcing particles in matrix is important for enhancing the characteristics of particle-dispersed type composite material. Casting had commonly been used in the production of particle-dispersed type composite material in the past, but the difficulty of uniformly dispersing the particles because the specific gravity of boride particles differs greatly from that of molten aluminum has been a defect.

[0003] The production of alloys using mechanical alloying technology has been examined in recent years. In one case, a composite powder having a strong bond between the matrix particles and the reinforcing particles is produced through mechanical alloying in advance. The production of composite material in accordance with conventional powder metallurgy using this composite powder as secondary material has been examined (for example, Japanese Kokai Publication Sho-60-131943, Japanese Kokai Publication Sho-60-9837). However, the boron compound commonly used in the production of wear resistant composite material is boron nitride (BN), which has poor chemical reactivity. Only the physical mixture-dispersion features of mechanical alloying have been used while ignoring the utilization of chemical solid-phase reactions.

[0004]

[Problems Solved by the Invention] In light of aforementioned circumstances, the purpose of the present invention is to provide self-lubricating aluminum composite material in which the coefficient of friction is decreased and weight loss of the material itself due to wear is reduced, and that also has outstanding characteristics of high strength, wear resistance, and self-lubricating properties while wear of partner material, which lacks wear resistance, is inhibited through the effects of self-lubricating dispersed particles,

as well as its production. A further purpose of the present invention is to provide a very inexpensive method of producing aluminum composite material having aforementioned outstanding characteristics by employing mechanical alloying treatment, and by utilizing aluminum- or aluminum alloy grinding powder generated copiously in the course of producing aluminum building material, which can be recycled, as well as boric acid, which had not been viewed as a raw material for structural composite material.

[0005]

[Means of Solving the Problems] In order to attain aforementioned objective, one aspect of the present invention is to provide self-lubricating aluminum composite material wherein aluminum oxide particles, aluminum carbide particles and boride particles are dispersed in an aluminum or aluminum alloy matrix, the mean grain size of the matrix being not more than 5 μm , the mean grain sizes of the dispersed aluminum oxide particles and aluminum carbide particles together being not more than 100 nm, and the mean grain size of the boride particles being not more than 1 μm . In an ideal mode, the volumetric fractions of dispersed aluminum oxide particles and aluminum carbide particles would be under 5% each. Furthermore, the volumetric fraction of boride particles should be under 30% and the total volumetric fraction of both dispersed aluminum oxide particles and aluminum carbide particles should be greater than 0.5% and less than 8%.

[0006] In addition, the present invention provides a method of producing aforementioned self-lubricating aluminum composite material. In the production method, a mixture of aluminum or aluminum alloy powder and boric acid is subjected to mechanical alloying treatment in the presence of auxiliary agents of carbon compounds, followed by pressurization under heating, such as powder compression molding followed by processing such as hot extrusion, casting, compression rolling, or continuous friction welding. Organic solvent or grinding oil can be used as aforementioned auxiliary agents of carbon compounds.

In particular, mechanical alloying treatment can be conducted as is without adding other auxiliary agents when aforementioned aluminum or aluminum alloy powder is grinding powder whose size is no more than 5 mm with grinding oil adhering.

[0007]

[Mode of Implementing the Invention] In the production method of the aluminum composite material pursuant to the present invention, auxiliary agent is premixed as required in a mixed powder of aluminum or aluminum alloy powder and boric acid followed by mechanical alloying treatment of said powder under prescribed conditions. Then, the resulting mixed powder is packed in a powder compression mold and subjected to conventional known processing such as hot extrusion, casting, or compression rolling following degasification or as is to complete the target aluminum composite material. Specifically,

in contrast to boron nitride, boron carbide, boron oxide or aluminum borate that are generally used as borides, a chemical change is created with the matrix through mechanical alloying treatment of boric acid with matrix powder in the production of aluminum composite material in the present invention which results in boride particles that are more uniformly dispersed and that have a strong bond with the matrix.

[0008] As stated above, in the method of the present invention, since matrix powder of aluminum or aluminum alloy along with boric acid are subjected to mechanical alloying treatment in the presence of auxiliary agents of carbon compounds, aforementioned matrix powder is mechanically ground, and the aluminum particles that are finer than originally are oxidized by oxygen in the atmosphere to create aluminum oxide (Al_2O_3) particles. In addition, they react with carbon of aforementioned carbon compounds to create aluminum carbide (Al_4C_3) particles. The boric acid undergoes an in-situ chemical reaction (in-situ reaction) with the matrix to create boride particles (compounds of boron and aluminum such as $\text{Al}_8\text{B}_2\text{O}_{15}$, B_2O , etc., compounds of boron and oxygen, and compounds of boron, aluminum, and oxygen), and boride particles are uniformly dispersed with other particles throughout the matrix with strong bond strength.

[0009]

Accordingly, aluminum composite material having outstanding characteristics of high strength, wear resistance, and self-lubricating properties can be obtained by subjecting aforementioned composite powder for example, to powder compression molding followed by processing such as hot extrusion, casting, compression rolling, or continuous friction welding (extrusion). In addition, self-lubricating wear-resistant composite material can be obtained in which wear of the composite material itself as well as of partner material is inhibited by the lubricating effects of the composite boride particles. The auxiliary agents of carbon compounds function as a carbon source for the creation of aluminum carbide particles as mentioned above, and they also act as plating inhibitors to ensure good mechanical grinding during mechanical alloying treatment.

[0010] As mentioned above, the self-lubricating aluminum composite material pursuant to the present invention comprises a matrix of aluminum or aluminum alloy powder, dispersed reinforcing particles comprising aluminum oxide (Al_2O_3) particles and aluminum carbide (Al_4C_3) particles created in mechanical alloying treatment as well as dispersed reinforcing particles of aforementioned boride particles that are created from boric acid that is mixed in matrix powder preceding mechanical alloying treatment. The mean grain size of the matrix particles in the composite material must be not more than $5\text{ }\mu\text{m}$, preferably not more than $1\text{ }\mu\text{m}$.

[0011] The aluminum oxide (Al_2O_3) particles and aluminum carbide (Al_4C_3) particles created in the course of mechanical alloying treatment are uniformly dispersed in the matrix and function as reinforcing

agents. The volumetric fractions (ratio to the volume of the entire material) of the aluminum oxide particles created and of the aluminum carbide particles are under 5% each, and the mean grain sizes should be not more than 100 nm, preferably not more than 50 nm. If the volumetric fraction of aluminum oxide particles and the volumetric fraction of aluminum carbide particles exceed 5%, the ductility of the resulting composite material would fall because of excessively fine dispersion and the anticipated characteristics could not be attained. Furthermore, finer mean grain sizes are preferred, and elevation of the strength is eliminated when it exceeds 100 nm. In addition, the total volumetric fraction of both aluminum oxide particles and aluminum carbide particles should be in a range of greater than 0.5% and less than 8%. If it falls below 0.5%, the strength of the resulting composite material would be inadequate, while there is a fear of the ductility falling if it exceeds 8%. On the other hand, the volumetric fraction of the boride particles in the composite material should be under 30%. If it exceeds 30%, embrittlement of the composite material is invited and the anticipated mechanical strength as well as the elasticity characteristics would not be obtained.

[0012] As mentioned above, the uniform dispersion of reinforcing particles in the matrix of particle-dispersed type composite material is important for strength elevation. Aluminum oxide particles, aluminum carbide particles and boride particles having aforementioned mean grain size are uniformly dispersed at aforementioned volumetric fractions in aluminum or aluminum alloy matrix particles in the aluminum composite material pursuant to the present invention, and the mean distance among these particles should be in the range of 0.02 to 1.5 μm . A range of 0.02 to 0.2 μm is especially desirable. The ductility of the resulting composite material would fall, inviting embrittlement, if the mean distance among these particles falls under 0.02 μm , while elevation of the mechanical strength would become inadequate, with the toughness falling markedly in extreme cases, if it exceeds 1.5 μm .

[0013] The mean grain size of the matrix particles and the reinforcing particles in aforementioned composite material, the volumetric fraction of the reinforcing particles and the mean distance among particles can be appropriately controlled by the treatment conditions in mechanical alloying, especially the treatment time. The method of producing aluminum composite material pursuant to the present invention is explained below. First, auxiliary agent is premixed as required in a mixed powder of aluminum or aluminum alloy powder and boric acid followed by mechanical alloying treatment of said powder under prescribed conditions to yield composite powder. Next, the resulting mixed powder is packed in a powder compression mold and subjected to conventional known processing such as hot extrusion, casting, or compression rolling following degasification or as is to complete the target aluminum composite material. Other than during

batch processing, it can be continuously produced by continuous friction welding (extrusion). In aforementioned course of production, the degasification or powder compression steps are controlled in the atmosphere, a vacuum or nonoxidizing atmosphere, but the atmosphere need not be controlled in mechanical alloying treatment. The grain size of the resulting aluminum oxide particles, aluminum carbide particles, and boride particles as well as their volumetric fractions can be controlled by selecting the treatment duration and alloying conditions.

[0014] Aluminum, aluminum alloy or quenched solid aluminum alloy or a mixture of these would be used as the matrix material. These materials could be atomized powder set in advance to a desired grain size using various types of atomizers or grinding powder below 5 mm size that is unsuited for remelting that had been generated copiously in the course of producing aluminum building material. Boride particles are not uniformly dispersed in matrix since progress of mechanical alloying treatment is prevented due to the high lubrication properties of boride when the mean grain size of the initial matrix powder is excessively large or the grain size distribution is not uniform, but even if they are uniformly dispersed, the duration of mechanical alloying treatment would have to be an extremely prolonged period of time. Consequently, aluminum or aluminum alloy powder having a uniform grain size distribution with mean grain size not more than 1 mm that is obtained by mechanical alloying treatment in advance of powder of not more than 5 mm in size would have to be used as the aluminum or aluminum alloy powder comprising the matrix.

[0015] Ethanol, heptane or various other types of organic solvents could be used as the auxiliary agent in mechanical alloying treatment.

In particular, grinding powder with water-soluble grinding oil adhering could be used in the present invention. Such grinding powder with grinding oil adhering is used as an auxiliary agent, and the addition of auxiliary agent is unnecessary since suitable amounts of such powder act as an inhibitor of plating in mechanical alloying treatment. It is extremely useful in production and allows the inexpensive production of composite material. The method of the present invention is useful from the perspective of recycling resources since it permits the utilization of grinding powder which is unsuitable for remelting. The amount of auxiliary agent used when adding it to mixed powder for processing can be appropriately set as a function of the desired volumetric fraction in composite material of aluminum carbide particles that are created by mechanical alloying treatment.

The amount of auxiliary agent used in response to the desired volumetric fraction can be approximated through calculations based on the amount of carbon in the auxiliary agent. It can also be determined through preliminary examination.

[0016]

[Working Examples] The present invention is explained concretely below through working examples. However, the present invention is

not restricted to these working examples.

[0017] Working Examples 1 to 3

Aluminum grinding chips and boric acid were weighed out so as to total 1 kg, followed by mechanical alloying treatment in the atmosphere at 90 rpm x 48 hours using a rotary ball mill with SUS 304 steel balls and a milling pot to complete production of composite powder.

Next, the composite powder that had been produced was recovered, subjected to powder compression molding at 500°C using a hot extruder, and then subjected to hot extrusion at an extrusion ratio of 10:1 and extrusion temperature of 500°C to yield various types of composite material.

[Table 1]

Sample No.		Matrix	Reinforcing Agent	Volumetric Fraction of Reinforcing Agent
Working Example	1	60603	Boric Acid	5%
	2	60603	Boric Acid	10%
	3	60603	Boric Acid	15%
Comparative Example	1	Al-Fe-Cu	Si	12%
	2	Al-Fe-Ni	Si	20%
	3	60603	—	—

[0018] Comparative Examples 1 and 2

Commercial aluminum-silicon-based wear-resistant powder alloy was subjected to powder compression molding at 400°C using a hot extruder without mechanical alloying treatment, followed by hot extrusion at an extrusion ratio of 10:1 and extrusion temperature of 400°C to produce a comparative sample.

[0019] Comparative Example 3

A comparative sample was produced identically with the procedure in Working Examples 1 to 3 except for omitting boric acid addition.

[0020] Table 2 presents the results of measuring the tensile strength, Young's modulus, ductility and hardness at room temperature of the various materials produced in aforementioned Working Examples 1 to 3 and Comparative Examples 1 to 3.

[Table 2]

Sample No.		Tensile strength (MPa)	Young's modulus (GPa)	Ductility (%)	Vicker's hardness (HV)
Working Example	1	427	71	11	132
	2	450	73	2	150
	3	515	75	1	162
Comparative Example	1	549	102	3	152
	2	591	107	2	185
	3	346	69	17	104

Table 2 clearly shows that the aluminum composite material produced through the method of the present invention has adequate mechanical properties.

[0021] In addition, abrasion/wear trials were conducted on the individual materials produced in aforementioned Working Examples 1 to 3 and Comparative Examples 1 to 3. In the trials, each trial material was worked into rod shape of 7.98 mm diameter and 20 mm length, welded to a partner disk (S45C) of approximately 50 mm diameter, 5 mm thickness and subjected to pin-on-disk testing under a 3.0 kgf load, velocity of 1.25 m/sec. Figure 1 shows the wear characteristics for common carbon steel (S45C). As clarified in Figure 1, wear of aluminum 6063 alloy/borate composite material pursuant to the present invention is slight, especially of the partner material, while wear of the partner material was especially pronounced because of the virtual absence of self-lubricating properties in material of Comparative Example 3 that underwent mechanical alloying treatment without the addition of boric acid.

[0022]

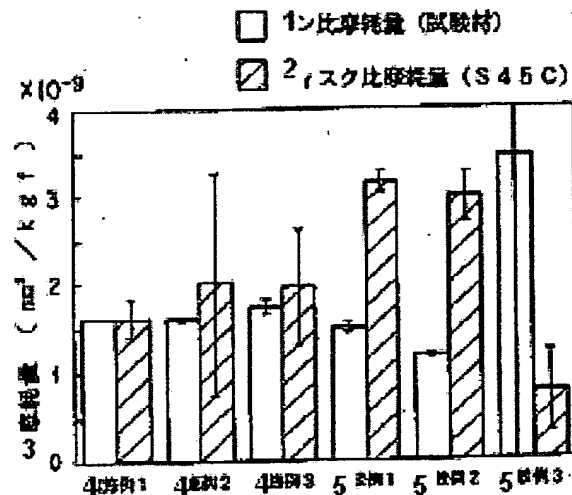
[Effects of Invention] As explained above, the aluminum composite material obtained through the method of the present invention has fine aluminum oxide particles, aluminum carbide particles, and boride particles that provide a high lubrication effect uniformly dispersed throughout the matrix of aluminum or aluminum alloy with strong bond strength. This provides outstanding characteristics of high strength, wear resistance, and self-lubricating properties. Furthermore, the coefficient of friction is lowered and the weight decrease of partner material itself due to wear is reduced. The invention has the effect of inhibiting wear even of partner material made of non-wear resistant material through the effects of the self-lubricating dispersed particles. Finally, it can be provided inexpensively. Since suitable amounts of grinding oil adhering to grinding powder act as an inhibitor

of plating in mechanical alloying treatment when using grinding powder generated in the course of producing aluminum building material as the matrix material, said grinding powder can be used as is in mechanical alloying treatment. As a result, aluminum composite material can be produced at low cost. Furthermore, the composite material pursuant to the present invention can be used as a substitute for aluminum or aluminum alloy that are currently used in aluminum building material and also as a substitute for stainless steel parts such as fasteners and machine screws in aluminum sashes, for example. By using aluminum exclusively in such structures, they can simply be reprocessed without dismantling when they become obsolete. Furthermore, the grinding powder that is generated can be reused as aluminum alloy matrix pursuant to the present invention. Accordingly, the present invention is advantageous in effectively permitting recycling of aluminum building material.

[Brief Description of Drawings]

[Figure 1] This is a graph showing the comparative amount of wear (3.0 kg load) of a pin and disk in abrasion/wear trials using material created in each working example and comparative example.

[Figure 1]



Key

- 1) Pin comparative wear (sample material)
- 2) Disk comparative wear (S45C)
- 3) Comparative amount of wear (mm²/kgf)
- 4) Working Example
- 5) Comparative Example

BEST AVAILABLE COPY

ACCT
COPY

DERWENT-ACC-NO: 1998-463231

DERWENT-WEEK: 199840

COPYRIGHT 2005 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Self lubricating aluminium group composite material for engine components in vehicle - has aluminium oxide and aluminium carbide particles with specific grain size along with boride particles of predefined grain size dispersed in aluminium of aluminium alloy matrix

PATENT-ASSIGNEE: YOSHIDA KOGYO KK[YOSI]

PRIORITY-DATA: 1996JP-0356593 (December 27, 1996)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	MAIN-IPC	PUB-DATE	LANGUAGE
JP 10195567 A	C22C 021/00	July 28, 1998	N/A
006			

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO
JP 10195567A	N/A	1996JP-0356593
December 27, 1996		

INT-CL (IPC): B22F001/00, C22C001/05 , C22C001/10 , C22C021/00 , C22C032/00

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 10195567A

BASIC-ABSTRACT:

The material consists of a mixture of aluminium alloy and boronated mixed by applying a mechanical alloy process in the presence of a support agent containing carbon content compound. A pressurised heat processing like hot extrusion, forging, rolling or continuous friction welding is performed after

compacting. When the aluminium or aluminium alloy powder is cut to 5mm or less and if the cutting oil has adhered, another supporting agent is not added while carrying out the mechanical alloying process. The aluminium oxide particle, aluminium carbide particle and a boride particle disperses in an aluminium or aluminium alloy matrix. The grain size of aluminium oxide and aluminium carbide particles are set to 100nm or less. The grain size of the boride particles is set to 1micrometer or less. The grain size of the matrix is set to 5micrometer or less.

USE - For manufacturing screws, rivets and various machine components.

ADVANTAGE - Provides high lubrication effect with strong bonding strength. Excels in antiwear quality and self lubricity. Prevents abrasion on mating material. Enables use as alternative material to some stainless steel building materials. Enables recycling of aluminium building materials.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.1/1

DERWENT-CLASS: L02 M22 P53

CPI-CODES: L02-F04; L02-H02; L02-J01B; M22-H03F;

----- KWIC -----

Basic Abstract Text - ABTX (1):

The material consists of a mixture of aluminium alloy and boric acid mixed by applying a mechanical alloy process in the presence of a support agent containing carbon content compound. A pressurised heat processing like not extrusion, forging, rolling or continuous friction welding is performed after compacting. When the aluminium or aluminium alloy powder is cut to 5mm or less and if the cutting oil has adhered, another supporting agent is not added while carrying out the mechanical alloying process. The aluminium oxide

particle,
aluminium carbide particle and a boride particle disperses in an
aluminium or
aluminium alloy matrix. The grain size of aluminium oxide and
aluminium
carbide particles are set to 100nm or less. The grain size of the
boride
particles is set to 1micrometer or less. The grain size of the
matrix is set
to 5micrometer or less.

Basic Abstract Text - ABTX (2):

USE - For manufacturing screws, rivets and various machine
components.

Title - TIX (1):

Self lubricating aluminium group composite material for engine
components
in vehicle - has aluminium oxide and aluminium carbide particles with
specific
grain size along with boride particles of predefined grain size
dispersed in
aluminium of aluminium alloy matrix

Standard Title Terms - TTX (1):

SELF LUBRICATE ALUMINIUM GROUP COMPOSITE MATERIAL ENGINE
COMPONENT VEHICLE
ALUMINIUM OXIDE ALUMINIUM CARBIDE PARTICLE SPECIFIC GRAIN SIZE BORIDE
PARTICLE
PREDEFINED GRAIN SIZE DISPERSE ALUMINIUM ALUMINIUM ALLOY MATRIX

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-195567

(43)公開日 平成10年(1998) 7月28日

(51)Int.Cl.*	識別記号	F I	
C 2 2 C	21/00	C 2 2 C	21/00 E
B 2 2 F	1/00	B 2 2 F	1/00 E
C 2 2 C	1/05	C 2 2 C	1/05 C
	1/10		1/10 J
	32/00		32/00 Q
審査請求 未請求 請求項の数11 F D (全 6 頁)			

(21)出願番号 特願平8-356593

(22)出願日 平成8年(1996)12月27日

(71)出願人 000006828

ワイケイ株式会社

東京都千代田区神田和泉町1番地

(72)発明者 館 弘樹

宮城県仙台市泉区天神沢1丁目28番5号

(74)代理人 弁理士 ▲吉▼田 繁喜

(54)【発明の名称】 自己潤滑性アルミニウム基複合材料及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】 高強度、耐摩耗性、自己潤滑性等の特性に優れた自己潤滑性アルミニウム基複合材料及びその製造方法を安価に提供する。

【解決手段】 アルミニウム又はアルミニウム合金粉末とホウ酸との混合粉を、炭素含有化合物の助剤の存在下にメカニカルアロイング処理を施した後、加熱下加圧加工する、例えば圧粉成形後、熱間押出、鍛造、圧延又は連続摩擦圧接等の加工を行う。アルミニウム又はアルミニウム合金粉末が、切削油が付着している5mm以下の切削粉末の場合、他の助剤を添加することなくそのままメカニカルアロイング処理することができる。これにより、マトリックス中に、酸化アルミニウム粒子、炭化アルミニウム粒子及びホウ化物粒子が分散してなり、マトリックスの平均粒径が5μm以下、分散する酸化アルミニウム粒子及び炭化アルミニウム粒子の平均粒径が共に100nm以下、ホウ化物粒子の平均粒径が1μm以下の複合材料が得られる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 アルミニウム又はアルミニウム合金マトリックス中に、酸化アルミニウム粒子、炭化アルミニウム粒子及びホウ化物粒子が分散してなり、マトリックスの平均粒径が $5\mu\text{m}$ 以下であり、分散する酸化アルミニウム粒子及び炭化アルミニウム粒子の平均粒径が共に 100nm 以下であり、ホウ化物粒子の平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする自己潤滑性アルミニウム基複合材料。

【請求項2】 分散する酸化アルミニウム粒子の体積率及び炭化アルミニウム粒子の体積率が共に5%未満であり、さらにホウ化物粒子の体積率が30%未満である請求項1に記載の複合材料。

【請求項3】 分散する酸化アルミニウム粒子、炭化アルミニウム粒子及びホウ化物粒子の各々の平均粒子間距離が $0.02\sim 1.5\mu\text{m}$ である請求項1又は2に記載の複合材料。

【請求項4】 分散する酸化アルミニウム粒子の体積率と炭化アルミニウム粒子の体積率の合計が0.5%より大きく、8%未満である請求項1乃至3のいずれか一項に記載の複合材料。

【請求項5】 ホウ化物粒子がホウ素とアルミニウムの化合物、ホウ素と酸素の化合物、及びホウ素とアルミニウムと酸素との化合物の少なくとも1種である請求項1乃至4のいずれか一項に記載の複合材料。

【請求項6】 アルミニウム又はアルミニウム合金粉末とホウ酸との混合粉を、炭素含有化合物の助剤の存在下にメカニカルアロイング処理を施した後、加熱下加圧加工することを特徴とするアルミニウム基複合材料の製造方法。

【請求項7】 前記助剤が有機溶剤又は切削油である請求項6に記載の方法。

【請求項8】 メカニカルアロイング処理によって得られた複合粉末を、大気中、真空中あるいは非酸化性雰囲気中で圧粉成形した後、熱間押出、鍛造、圧延又は連続摩擦圧接等の加工を行う請求項6又は7に記載の方法。

【請求項9】 前記アルミニウム又はアルミニウム合金粉末が 5mm 以下のサイズの切削粉末であり、かつ、前記助剤が該切削粉末に付着している切削油である請求項6乃至8のいずれか一項に記載の方法。

【請求項10】 前記アルミニウム又はアルミニウム合金材料として、平均粒径 1mm 以下の均一な粒度分布を持つアルミニウム又はアルミニウム合金粉末を用いる請求項6乃至9のいずれか一項に記載の方法。

【請求項11】 前記アルミニウム又はアルミニウム合金材料として、アルミニウム又はアルミニウム合金の 5mm 以下の粉末に予めメカニカルミリング処理を施し、適宜分級を行うことによって均一な粒度分布に調整したものをを用いる請求項6乃至10のいずれか一項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、自己潤滑性アルミニウム基複合材料、さらに詳しくは、車両用のエンジン部品、ネジ、リベット類、その他機械部品等に好適に使用される高強度、耐摩耗性、自己潤滑性等の特性に優れたアルミニウム基複合材料及びその製造方法に関する。本発明はまた、メカニカルアロイング処理を利用することにより、その原材料として、構造材用複合材の原料として顧みられることのなかったホウ酸と、再溶解に不適な細かいアルミニウム又はアルミニウム合金の切削粉末を利用でき、良好なリサイクル材料として有用なアルミニウム基複合材料及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】粒子分散型の複合材料の特性を向上させるためには、もとより強化粒子がマトリックス中に均一に分散していることが重要である。従来、粒子分散型複合材料の製造においては、一般に鋳造法が用いられているが、ホウ化物粒子とアルミニウム溶湯とは比重が大きく異なるため、均一に分散させることが困難であるという欠点があった。

【0003】近年、メカニカルアロイングの技術を利用して合金を製造する方法が検討されており、その一つとして、予めメカニカルアロイングによりマトリックス粒子と強化粒子との間に強い結合を生じさせた複合粉を作製し、この複合粉を2次的材料として用いて通常の粉末冶金の技術に従って複合材料を製造することが検討されている（例えば、特開昭60-131943号、特開昭60-9837号）。しかしながら、一般に耐摩耗性複合材料を作製するために用いられるホウ化物は化学反応性に乏しい窒化ホウ素（BN）であり、メカニカルアロイングの物理的な混合分散の機能のみを利用するものでしかなく、化学的な固相反応の利用については無視されてきた。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、前記のような事情に鑑み、摩擦係数の低減と摩耗による材料自体の減量を低減させるのみならず、自己潤滑性分散粒子の効果により、非耐摩耗性材料である相手材の摩耗をも抑制する高強度、耐摩耗性、自己潤滑性等の特性に優れた自己潤滑性アルミニウム基複合材料及びその製造方法を提供することを目的とするものである。さらに本発明の目的は、メカニカルアロイング処理を利用して、アルミニウム基複合材料の製造工程で多量に発生するアルミニウム又はアルミニウム合金の切削粉末をリサイクル使用でき、また構造材用複合材料の原料として顧みられることのなかったホウ酸を利用して、上記のような優れた特性を有するアルミニウム基複合材料を非常に安価に製造できる方法を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】前記目的を達成するために、本発明の側面によれば、アルミニウム又はアルミニウム合金マトリックス中に、酸化アルミニウム粒子、炭化アルミニウム粒子及びホウ化物粒子が分散しており、マトリックスの平均粒径が $5\mu\text{m}$ 以下であり、分散する酸化アルミニウム粒子及び炭化アルミニウム粒子の平均粒径が共に 100nm 以下であり、ホウ化物粒子の平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする自己潤滑性アルミニウム基複合材料が提供される。好適な態様においては、分散する酸化アルミニウム粒子の体積率及び炭化アルミニウム粒子の体積率が共に5%未満であり、さらにホウ化物粒子の体積率が30%未満であることが望ましく、さらに、分散する酸化アルミニウム粒子の体積率と炭化アルミニウム粒子の体積率の合計が0.5%より大きく、8%未満であることが望ましい。

【0006】さらに本発明によれば、前記のような自己潤滑性アルミニウム基複合材料を製造する方法も提供され、その方法は、アルミニウム又はアルミニウム合金粉末とホウ酸との混合粉を、炭素含有化合物の助剤の存在下にメカニカルアロイング処理を施した後、加熱下加工する、例えば圧粉成形後、熱間押出、鍛造、圧延又は連続摩擦圧接等の加工を行うことを特徴とする。上記炭素含有化合物の助剤としては、有機溶剤や切削油等を用いることができる。特に、前記アルミニウム又はアルミニウム合金粉末が、切削油が附着している 5mm 以下の切削粉末の場合、他の助剤を添加することなくそのままメカニカルアロイング処理することができる。

【0007】

【発明の実施の形態】本発明のアルミニウム基複合材料の製造方法は、アルミニウム又はアルミニウム合金粉末とホウ酸との混合粉に、必要に応じて助剤を予備混合した後、該粉末を所定条件の下でメカニカルアロイング処理し、複合粉末とする。次に、得られた複合粉末を、圧粉容器に充填、脱ガス後、又はそのまま、従来公知の熱間押出、鍛造、圧延等の加工を施して目的とするアルミニウム基複合材料を製造するものである。すなわち、本発明は、アルミニウム粉末合金の製造において、一般的なホウ化物として利用される窒化ホウ素、炭化ホウ素、酸化ホウ素、ホウ酸アルミニウムなどと異なり、ホウ酸をマトリックス粉末と共にメカニカルアロイング処理を行うことで、マトリックスとの間で化学変化が生じ、生成するホウ化物粒子のより均一な分散とマトリックスに対する強固な結合を得ることを特徴としている。

【0008】上記のように、本発明の方法によれば、アルミニウム又はアルミニウム合金のマトリックス粉末をホウ酸と共に炭素含有化合物の助剤の存在下にメカニカルアロイング処理を施すものであるため、上記マトリックス粉末が機械的に摩砕され、生成したより微細なアルミニウム粒子が大気中の酸素によって酸化されて酸化アルミニウム(Al_2O_3)粒子を生成すると共に、一部

は上記炭素含有化合物の炭素と化合して炭化アルミニウム(Al_4C_3)粒子を生成し、しかも、ホウ酸がマトリックスとin-situな化学反応(その場反応)を生じてホウ化物粒子($\text{Al}_8\text{B}_2\text{O}_{15}$ 、 B_2O_3 等のホウ素とアルミニウムの化合物、ホウ素と酸素の化合物、及びホウ素とアルミニウムと酸素との化合物)を生成し、かつ、他の生成粒子と共に、ホウ化物粒子が強固な結合力でマトリックス中に均一に分散する。

【0009】従って、前記のような複合粉末を、例えば圧粉成形後、熱間押出、鍛造、圧延、連続摩擦圧接(押出)等の加工を行うことにより、高強度、耐摩耗性、自己潤滑性等の特性に優れたアルミニウム基複合材料を得ることができる。また、複合させたホウ化物粒子の潤滑効果により、摩耗の際に複合材自身の摩耗のみならず、相手材の摩耗をも抑える自己潤滑性耐摩耗性複合材料を得ることができる。なお、炭素含有化合物の助剤は、前記のように炭化アルミニウム粒子生成のための炭素源として供されるほか、焼付き防止剤として機能し、メカニカルアロイング処理において良好な機械的摩砕作用を確保できる。

【0010】前記したように、本発明に係る自己潤滑性アルミニウム基複合材料は、アルミニウム又はアルミニウム合金粒子から成るマトリックスと、メカニカルアロイング処理の際に生成した酸化アルミニウム(Al_2O_3)粒子及び炭化アルミニウム(Al_4C_3)粒子から成る分散強化粒子に加えて、さらにメカニカルアロイング処理に先立ってマトリックス粉末に混合されたホウ酸から生成した前記のようなホウ化物粒子から成る分散強化粒子で構成されている。複合材料中のマトリックス粒子の平均粒径は $5\mu\text{m}$ 以下とする必要があり、より好ましくは $1\mu\text{m}$ 以下である。

【0011】メカニカルアロイング工程で生成する酸化アルミニウム(Al_2O_3)粒子及び炭化アルミニウム(Al_4C_3)粒子はマトリックス中に均一に分散し、強化材の役目を果たす。これら生成する酸化アルミニウム粒子の体積率(材料全体の体積に対する比率)及び炭化アルミニウム粒子の体積率は共に5%未満であり、しかもその平均粒径は 100nm 以下、好ましくは 50nm 以下であることが望ましい。酸化アルミニウム粒子の体積率と炭化アルミニウム粒子の体積率が5%以上になると、過度の微細分散により、得られる複合材料の延性が低下してしまい、所望の特性が達成できなくなる。また、それらの平均粒径は細かい方が望ましく、 100nm を超えると強度上昇に効果が無くなる。さらに、酸化アルミニウム粒子の体積率と炭化アルミニウム粒子の体積率の合計は0.5%より大きく、8%未満の範囲内にあることが望ましい。0.5%以下では、得られる複合材料の強度が不十分となり、逆に8%以上では延性が低下する恐れがある。一方、複合材料中のホウ化物粒子の体積率は30%未満であることが望ましい。30%以上

になると、複合材料の脆化を招き、所期の機械的強度と弾性特性を得ることが困難となる。

【0012】前述したように、粒子分散型複合材料においては、マトリックス中に強化粒子が均一に分散していることが強度上昇にとって重要となる。本発明に係るアルミニウム基複合材料においては、アルミニウム又はアルミニウム合金マトリックス粒子中に前記したような平均粒径の酸化アルミニウム粒子、炭化アルミニウム粒子及びホウ化物粒子が前記した体積率で均一に分散されているが、これらの生成粒子の平均粒子間距離は0.02 10 ~1.5 μ mの範囲内にあることが望ましい。特に0.02~0.2 μ mの範囲が好ましい。この平均粒子間距離が0.02 μ m未満であると、得られる複合材料の延性の低下、脆化を招き、一方、1.5 μ mより大きくなると、逆に機械的強度の上昇が不十分となり、極端な場合は靱性が著しく低下してしまう。

【0013】前記したような複合材料中のマトリックス粒子や強化粒子の平均粒径、強化粒子の体積率や平均粒子間距離は、メカニカルアロイングの処理条件、特に処理時間によって適宜制御できる。以下、本発明のアルミ 20 ニウム基複合材料の製造方法について説明すると、まず、アルミニウム又はアルミニウム合金粉末とホウ酸の混合粉末に、必要に応じて助剤を予備混合した後、該粉末を所定条件の下でメカニカルアロイング処理し、複合粉末とする。次に、得られた複合粉末を、圧粉容器に充填、脱ガス後、又はそのまま、従来公知の熱間押出、鍛造、圧延等の加工を施して目的とするアルミニウム基複合材料を製造する。バッチ処理以外にも、連続摩擦圧接（押出）法により連続的にも製造可能である。上記製造 30 工程において、脱ガスや圧粉工程等は大気中、真空中或いは非酸化性雰囲気中に制御されるが、メカニカルアロイング処理においては雰囲気制御は必須ではなく、処理時間とアロイング条件を選択することにより、生成する酸化アルミニウム粒子、炭化アルミニウム粒子及びホウ化物粒子の粒径並びにそれらの体積率を制御することができる。

【0014】マトリックスの素材としては、アルミニウム、アルミニウム合金または急冷凝固アルミニウム合金或いはそれらの混合物等が用いられる。これらの素材は 40 予め各種アトマイズにより所望の粒径にされたアトマイズ粉であってもよく、またアルミ建材の製造工程で多量に発生する再溶解に不適な5mm以下のサイズの切削粉末であってもよい。マトリックス粉末の出発状態において、その平均粒径が過度に大きい場合、又は粒度分布が均一でない場合には、ホウ化物の高い潤滑性によってメカニカルアロイング処理の進行が阻害されるために、マトリックス中へのホウ化物粒子の均一分散が達成されず、また、たとえ達成されたとしても、極めて長時間のメカニカルアロイング処理時間を必要とする。そのため、マトリックスとするアルミニウム又はアルミニウム

合金粉末として、5mm以下の粉末を利用し、その粉末を予め単体としてメカニカルミリング処理を施すなどして、平均粒径1mm以下の均一な粒度分布を持つアルミニウム又はアルミニウム合金の粉末を用いることが必要である。

【0015】メカニカルアロイング処理の助剤としては、エタノール、ヘプタン、その他の各種有機溶剤が使用できる。特に本発明においては、水溶性の切削油が付着した切削粉末を用いることができる。このような切削粉末は、それに付着している切削油を助剤として活用でき、メカニカルアロイング工程において適量の焼付き防止剤として働くため、助剤の添加が不要であり、製造上極めて有利であり、複合材料を安価に製造できる。また、本発明の方法は、再溶解に不適な切削粉末を利用できるため、資源のリサイクル使用の観点からも有利である。なお、処理する混合粉に助剤を添加する場合の使用量は、メカニカルアロイング処理によって生成する炭化アルミニウム粒子の複合材料中の所望の体積率に応じて適宜設定することができる。所望の体積率に応じた助剤の使用量は、助剤中の炭素量から計算によって概略値を求めることもでき、また予め予備実験によって求めておくこともできる。

【0016】

【実施例】以下、実施例を示して本発明について具体的に説明するが、本発明が下記実施例に限定されるものではないことはもとよりである。

【0017】実施例1~3

表1に示すアルミニウム切削チップとホウ酸をそれぞれ全体重量で1kgとなるよう秤量し、共にSUS304製の鋼球とミル用ボットを用いて回転式ボールミルによって大気雰囲気中で90rpm×48時間のメカニカルアロイング処理を施し、複合粉末を製造した。次に、製造された複合粉末を回収し、熱間押出機により500℃で圧粉成形を行い、続いて押出比10:1、押出温度500℃で熱間押出を行い、各種の複合材料を得た。

【表1】

試料番号		マトリックス	強化材	強化材体積率
実施例	1	6063	ホウ酸	5%
	2	6063	ホウ酸	10%
	3	6063	ホウ酸	15%
比較例	1	Al-Fe-Cu	Si	12%
	2	Al-Fe-Ni	Si	20%
	3	6063	—	—

【0018】比較例1及び2

メカニカルアロイング処理は行わずに、市販のアルミシリコン系の耐摩耗性粉末合金を熱間押出機により40

0℃で圧粉成形を行い、続いて押出比10:1、押出温度400℃で熱間押出を行い、比較試料を作製した。

【0019】比較例3

ホウ酸を添加しない以外は実施例1～3と同様にして比較試料を作製した。

*【0020】上記実施例1～3及び比較例1～3で作製された各材料の室温におけるそれぞれの引張強度、ヤング率、伸び及び硬度の測定結果を表2に示す。

【表2】

試料番号		引張強度 (MPa)	ヤング率 (GPa)	伸び (%)	ビッカース 硬さ (HV)
実 施 例	1	427	71	11	132
	2	450	73	2	150
	3	515	75	1	162
比 較 例	1	549	102	3	152
	2	591	107	2	185
	3	346	69	17	104

表2から明らかなように、本発明の方法によって製造されたアルミニウム基複合材料は十分な機械的性質を示している。

【0021】また、上記実施例1～3及び比較例1～3で作製された各材料に対して摩擦摩耗試験を行った。試験は、各試験材料を直径7.98mm、長さ20mmのサイズの丸棒の形状に加工し、直径約50mm、厚さ5mmの相手材ディスク(S45C)と接触させ、荷重3.0kgf、速度1.25m/secの条件でピンオンディスク方式で行った。図1に一般炭素鋼(S45C)に対する摩耗特性の値を示す。図1から明らかなように、本発明のアルミ6063合金/ホウ酸複合材料では特に相手材の摩耗が少なく、自己潤滑性の効果が現れているが、ホウ酸を添加せずにメカニカルアロイング処理を行った比較例3の材料では、自己潤滑性が殆どないため相手材の摩耗が著しく多かった。

【0022】

【発明の効果】以上のように、本発明の方法によって得られるアルミニウム基複合材料は、微細な酸化アルミニウム粒子、炭化アルミニウム粒子、及び高い潤滑効果を有するホウ化物粒子をアルミニウム又はアルミニウム合金マトリックス中に強固な結合力で均一に分散させたものであり、高強度、耐摩耗性、自己潤滑性等の特性に優れ、摩擦係数の低減と摩耗による材料自体の減量を低減※

※させるのみならず、自己潤滑性分散粒子の効果により、非耐摩耗性材料である相手材の摩耗をも抑制するという特有の効果を奏し、しかも安価に提供される。特に、アルミニウム建材の製造において生じる切削粉末をマトリックス材料として用いる場合、切削粉末に付着している切削油が適量の焼付き防止剤として働くので、該切削粉末をそのままメカニカルアロイング処理に用いることができる。その結果、アルミニウム基複合材料を低コストで製造できる。さらに、本発明による複合材料を、アルミニウム建材において現在使用されているアルミニウム又はアルミニウム合金以外の部品、例えばアルミサッシにおけるクレセント、ビス等のステンレス製部品の代替に用い、このような建材を完全アルミ化することにより、不用となったアルミニウム建材を解体する際、部品の取外しを行わずにそのまま再加工し、また発生する切削粉末は再び本発明に係るアルミニウム合金マトリックスとして再利用することもできる。従って、アルミニウム建材を有効にリサイクル使用できるという利点を有する。

【図面の簡単な説明】

【図1】各実施例及び比較例で作製した材料を用いた摩擦摩耗試験によるピン及びディスクの比摩耗量(荷重3.0kg)を示すグラフである。

【図1】

